(19) BUNDESREPUBLIK **DEUTSCHLAND**

Offenlegungsschrift ® DE 198 09 944 A 1



DEUTSCHES PATENTAMT (21) Aktenzeichen: ② Anmeldetag:

(3) Offenlegungstag:

198 09 944.4 7. 3.98

1. 10. 98

(5) Int. Cl.6: H 05 B 33/14

> C 09 K 19/06 C 09 K 11/06 C 07 C 43/21 C 07 C 13/573

G 09 F 9/35 G 02 F 1/13

// C07C 13/28,43/225, 43/00,69/00,211/00, 217/00,219/00,229/00, 25/18,25/24,C07D 227/00,247/02,285/08, 271/06

(30) Unionspriorität:

971051999.0

27. 03. 97 EP

7 Anmelder:

Merck Patent GmbH, 64293 Darmstadt, DE

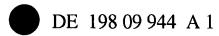
(12) Erfinder:

Poetsch, Eike, Dr., 64367 Mühltal, DE; Weber, Georg, 64390 Erzhausen, DE; Derow, Stephan, Dr., 64285 Darmstadt, DE

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

- (54) Elektrolumineszierende Flüssigkristallvorrichtung
- Die Erfindung betrifft eine elektrolumineszierende Flüssigkristallvorrichtung, enthaltend eine oder mehrere Schichten, wobei mindestens eine dieser Schichten ein flüssigkristallines Medium enthält, welches Verbindungen aufweist, die Elektrolumineszenz- und/oder Ladungstransporteigenschaften besitzen, dadurch gekennzeichnet, daß die Vorrichtung mit Wechselspannung betrieben wird, die darin verwendeten flüssigkristallinen Medien, sowie die Verwendung dieser Vorrichtung in Flüssigkristallanzeigeelementen, als Lichtquelle für unpolarisiertes oder polarisiertes Licht, oder als aktives Element in elektrooptischen Anordnungen.

BEST AVAILABLE COPY



Beschreibung

Die vorliegende Erfindung betrifft eine elektrolumineszierende Flüssigkristallvorrichtung, enthaltend eine oder mehrere Schichten, wobei mindestens eine dieser Schichten ein flüssigkristallines Medium enthält, welches Verbindungen aufweist die Elektrolumineszenz- und/oder Ladungstransporteigenschaften besitzen, dadurch gekennzeichnet, daß die Vorrichtung mit Wechselspannung betrieben wird.

LED-Anzeigen (LED = light emitting diodes) auf der Grundlage anorganischer oder organischer Schichten, die Elektrolumineszenz zeigen, d. h. bei Anlegen einer elektrischen Spannung unter Stromfluß Licht emittieren, sind der Technik u. a. als Alternative zu den bekannten LCD (LCD = liquid crystal displays) bekannt.

Solche Anzeigen bestehen im Allgemeinen aus mehreren Schichten, und sind dadurch charakterisiert, daß bei Anlegen einer Spannung positive bzw. negative Ladungsträger jeweils von einer Elektrode durch eine Ladungstransportschicht in eine zentrale lichtemittierende Schicht transportiert werden.

Die EP 423 283 B1 beschreibt z. B. eine solche elektrolumineszierende Anordnung, die aus mehreren organischen Schichten aufgebaut ist und als lichtemittierende Schicht ein halbleitendes konjugiertes Polymer aufweist.

Die aus dem Stand der Technik bekannten LED's auf der Grundlage organischer Materialien weisen jedoch einige Nachteile auf, die einer erfolgreichen praktischen Anwendung im Wege stehen, wie z. B. ihr komplizierter mehrschichtiger Aufbau und insbesondere die begrenzte Lebensdauer der bisher verwendeten Materialien, welche die Betriebsdauer der LED-Anzeige auf wenige Stunden verkürzt.

Dies kann u. a. auf die Zersetzung der lichtemittierenden Verbindungen durch elektrolytische Redoxprozesse zurückgeführt werden, die während des Betriebs mit Gleichspannung auftreten. Hinzu kommen Diffusionsprozesse innerhalb der Schichten, welche die Lebensdauer ebenfalls verkürzen können.

Seit einiger Zeit sind auch LED's bekannt, bei denen Ladungstransport und Lichtemission in einer Schicht erfolgen, die aus einheitlich orientierten diskotisch flüssigkristallinen Phasen besteht. Solche elektrolumineszierenden Anordnungen werden z. B. in der WO 95-17018 und in T. Christ et al., Advanced Materials 9 (1), 48 (1997) beschrieben.

In solchen Anordnungen hat, wie auch in der oben genannten Publikation von T. Christ et al. erwähnt, die einheitliche Orientierung der Flüssigkristallphase einen großen Einfluß auf die Eigenschaften der Anordnung, wie z. B. die Betriebsspannung.

Bei der Herstellung von Anordnungen wie in den oben genannten Dokumenten beschrieben sind deshalb zusätzliche Schritte erforderlich, wie z. B. die Polymerisation bzw. Vernetzung der Flüssigkristallphase oder ihre thermische Behandlung, z. B. Einfrieren durch Abkühlung unterhalb der Glastemperatur. Dadurch wird die Herstellung solcher Anordnungen aufwendiger. Außerdem gelten die oben beschriebenen Nachteile der begrenzten Lebensdauer auch für diese Anordnungen.

Es bestand daher die Aufgabe, eine elektrolumineszierende Vorrichtung zu entwickeln, welche die oben beschriebenen Nachteile nicht oder in geringerem Ausmaß aufweist, sowie geeignete flüssigkristalline Medien zur Verwendung in einer solchen Vorrichtung bereitzustellen.

Es wurde nun überraschend gefunden, daß durch Bereitstellung einer wie im folgenden beschriebenen erfindungsgemäßen elektrolumineszierenden Flüssigkristallvorrichtung, die mit Wechselspannung betrieben wird, und von darin verwendeten Flüssigkristallmedien, diese Aufgabe gelöst werden kann.

Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist eine elektrolumineszierende Flüssigkristallvorrichtung, enthaltend eine oder mehrere Schichten, wobei mindestens eine dieser Schichten ein flüssigkristallines Medium enthält, welches Verbindungen aufweist die Elektrolumineszenz- und/oder Ladungstransporteigenschaften besitzen, dadurch gekennzeichnet, daß die Vorrichtung mit Wechselspannung betrieben wird.

Ein weiterer Gegenstand der vorliegenden Erfindung sind flüssigkristalline Medien, die zur Verwendung in einer erfindungsgemäßen Vorrichtung geeignet sind.

Schließlich ist ein Gegenstand der Erfindung die Verwendung einer erfindungsgemäßen elektrolumineszierenden Flüssigkristallvorrichtung in Flüssigkristallanzeigeelementen, als Lichtquelle für unpolarisiertes oder polarisiertes Licht, oder als aktives Element in elektrooptischen Anordnungen.

Die erfindungsgemäßen Flüssigkristallmedien können diskotische und/oder kalamitische Flüssigkristalle enthalten. Flüssigkristallmedien enthaltend überwiegend kalamitische Flüssigkristalle sind bevorzugt.

Als Ladungstransportverbindungen werden bevorzugt diskotische oder kalamitische flüssig kristalline Verbindungen verwendet. Besonders bevorzugt sind kalamitische flüssigkristalline Verbindungen.

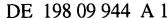
Der Aufbau der erfindungsgemäßen elektrolumineszierenden Flüssigkristallvorrichtung entspricht vorzugsweise der für LCD-Anzeigen üblichen Bauweise, d. h. sie besteht im wesentlichen aus

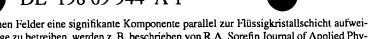
- zwei Trägerplatten, die mit einer Umrandung eine Zelle bilden,
- einem in der Zelle befindlichen erfindungsgemäßen flüssigkristallinen Medium, das die Ladungstransportverbindungen und/oder die elektrolumineszierenden Verbindungen enthält und
- Elektrodenschichten, ggf. mit Orientierungsschichten, auf den Innenseiten der Trägerplatten.

Besonders bevorzugt sind erfindungsgemäße Vorrichtungen, die aus einer Schicht eines flüssigkristallinen Mediums bestehen, das Ladungstransport- und elektrolumineszierende Verbindungen enthält.

Als Elektroden können beispielsweise Glasplatten mit einer leitfähigen Beschichtung aus z. B. Indium-Zinn-Oxid (ITO) oder Aluminium verwendet werden. Besonders bevorzugt sind Vorrichtungen, die eine Elektrode mit einer ITO-und eine Elektrode mit einer Aluminiumbeschichtung aufweisen. Es ist jedoch auch möglich, Elektroden zu verwenden, die gleichzeitig ITO und Aluminium als Elektrodenmaterial enthalten, z. B. in Form von gemusterten Elektroden, worin sich Bereiche mit den jeweils unterschiedlichen Materialien abwechseln.

Die erfindungsgemäße elektrolumineszierende Flüssigkristallvorrichtung kann auch eine Vorrichtung in Analogie zu einer Flüssigkristallanzeige gemäß dem IPS-Effekt sein (IPS = in plane switching), d. h. in der die elektrischen Signale





10

45

so erzeugt werden, daß die elektrischen Felder eine signifikante Komponente parallel zur Flüssigkristallschicht aufweisen. Die Prinzipien, solch eine Anzeige zu betreiben, werden z. B. beschrieben von R.A. Sorefin Journal of Applied Physics, Vol. 45, Nr. 12, S. 5466-5468 (1974).

Weitere bevorzugte Ausführungsformen der vorliegenden Erfindung sind solche, worin

- das flüssigkristalline Medium flüssigkristalline Ladungstransportverbindungen aufweist,
- das flüssigkristalline Medium kalamitisch flüssigkristalline Ladungstransportverbindungen aufweist.
- das flüssigkristalline Medium flüssigkristalline elektrolumineszierende Verbindungen aufweist,
- das flüssigkristalline Medium kalamitisch flüssigkristalline elektrolumineszierende Verbindungen aufweist.

Die flüssigkristallinen Ladungstransportverbindungen können elektronenarme und/oder elektronenreiche Verbindungen sein, oder Verbindungen, die gleichzeitig elektronenarme und elektronenreiche Zentren aufweisen.

Elektronenarme kalamitisch flüssigkristalline Ladungstransportverbindungen können z. B. ausgewählt werden aus der Reihe der Phenyl- oder Cyclohexyloxadiazole, Phenyl- oder Cyclohexylthiadiazole, Phenyl- oder Cyclohexylpyridine oder Phenyl- oder Cyclohexylpyrimidine, oder aus der Reihe der durch Alkylgruppen substituierten Biphenyle, Terphenyle, Phenylcyclohexane, Cyclohexylbiphenyle, Phenylcyclohexylcyclohexane oder Cyclohexylcyclohexane.

Elektronenreiche kalamitisch flüssig kristalline Ladungstransportverbindungen können z. B. ausgewählt werden aus der Reihe der durch Alkoxy-, Alkanoyl- oder Alkanoyloxygruppen substituierten Biphenyle, Terphenyle, Phenylcyclohexane, Cyclohexylbiphenyle, Phenylcyclohexylcyclohexane oder Cyclohexylcyclohexane, oder aus der Reihe der Phenyl- oder Cyclohexylfurane, Phenyl- oder Cyclohexyldioxane, Phenyl- oder Cyclohexylthiofurane, Phenyl- oder Cyclohexyldioxane, hexylthiazole, Phenyl- oder Cyclohexylpiperidine oder Stilbene.

Die erfindungsgemäßen Flüssigkristallmedien können überwiegend aus elektronenarmen oder überwiegend aus elektronenreichen Ladungstransportverbindungen bestehen. Es können auch Kombinationen von elektronenarmen und elektronenreichen Ladungstransportverbindungen verwendet werden.

Typische Beispiele für elektrolumineszierende Verbindungen sind die Verbindungen der folgenden Formeln, die die 25 Erfindung erläutern sollen, ohne sie zu begrenzen:

$$N = N$$

Beispiele für flüssigkristalline elektrolumineszierende Verbindungen sind u. a. bestimmte diskotische Flüssigkristalle wie z. B. Triphenylene, Phthalocyanine, Perylene und deren Derivate, Porphyrine, Phenanthrene oder Pentahelicene.

In einer besonders bevorzugten Ausführungsform enthält die erfindungsgemäße elektrolumineszierende Flüssigkristallvorrichtung eine flüssigkristalline Verbindung, die gleichzeitig Ladungstransport und Elektrolumineszenz bewirkt.

Durch den Betrieb der erfindungsgemäßen elektrolumineszierenden Flüssigkristallvorrichtung mit Wechselspannung werden Zersetzungsreaktionen, die in Flüssigkristallmedien auftreten können, welche längere Zeit einer Gleichspannung bzw. einem Stromfluß ausgesetzt sind, und die z. B. durch elektrolytische Redoxprozesse verursacht werden, unterdrückt bzw. weitgehend, oder im Idealfall sogar vollständig, vermieden.

Die Frequenz des Wechselfeldes ist bevorzugt ≥ 1 Hz, besonders bevorzugt ≥ 20 Hz.

Die einheitliche Orientierung der erfindungsgemäßen flüssigkristallinen Medien kann in einfacher Form z. B. durch Methoden zur Oberflächenorientierung erreicht werden, wie sie allgemein aus Flüssigkristallanzeigen bekannt sind. Beispielsweise kann durch Orientierungsschichten aus geriebenem Polyimid eine einheitliche planare Orientierung oder senkrechte Orientierung je nach Art des Polyimids der Flüssigkristallmoleküle erzielt werden. Besonders zuverlässig gelingt die Senkrechtorientierung unter Verwendung des mit der ITO-Schicht koreaktiven trans-4-Propyl-1-[4-(3-trimethoxysilylpropyloxy-phenyl]-cyclohexans(ZLI3334, Merck).

Die bevorzugte Orientierungsrichtung wird durch die Richtung der die Elektronenübergänge bestimmenden Vektoren der Übergangsmomente der Fluoreszenzfarbstoffe vorgegeben. Die Vektorrichtung kann für ein und denselben Fluoreszenzfarbstoff wellenlängenabhängig in Richtung der Moleküllängsachse verlaufen aber auch senkrecht zu ihr stehen. Sie kann für zwei strukturell unterschiedliche Farbstoffe verschieden sein, d. h. parallel zur Längsachse oder senkrecht dazu stehen (vergl. "Handbook of Liquid Crystals", Hans Kelker/Rolf Hatz, Verlag Chemie, Weinheim 1980, S. 272–281). Da eine weitgehend parallele Anordnung des Fluoreszenzfarbstoffes mit seiner Längsachse zur Längsachse der Moleküle des flüssigkristallinen Mediums besteht (ibid, S. 272), folgt daraus die bevorzugte Orientierungsrichtung des zur Verwendung gebrachten flüssigkristallinen Mediums. So wird eine homöotrope Orientierung kalamitischer Flüssigkristalle, d. h. mit der Moleküllängsachse überwiegend senkrecht zur Elektrodenoberfläche, bei einer Parallelität des Übergangsmomentvektors mit der Moleküllängsachse des Fluoreszenzfarbstoffes bevorzugt, und eine parallele Orientierung, d. h. mit der Moleküllängsachse überwiegend parallel zur Elektrodenoberfläche, beim Vorliegen einer senkrechten Vektorrichtung des Übergangsmomentes zur Moleküllängsachse des Fluoreszenzfarbstoffes bevorzugt.

Durch das Anlegen eines Wechselfeldes an die erfindungsgemäße elektrolumineszierende Flüssigkristallvorrichtung zur Erzeugung von Ladungsträgern, die eine Lichtemission in den Verbindungen mit elektrolumineszierenden Eigenschaften bewirken, kann gleichzeitig auch die Orientierung des gesamten flüssigkristallinen Mediums verstärkt werden. Dadurch ist es möglich, den Ladungstransport durch die flüssigkristallinen Ladungstransportverbindungen gezielt zu beeinflussen und somit bestimmte Eigenschaften der Vorrichtung, wie z. B. die Betriebsspannung oder die Lichtausbeute der Vorrichtung, zu optimieren.

Die flüssigkristallinen Ladungstransportverbindungen können auch eine oder mehrere polare Gruppen, wie z. B. F, Cl, Nitro- oder Cyanogruppen oder fluorierte Alkyl- oder Alkoxygruppen enthalten. Solche Gruppen bewirken eine zusätzliche Ausrichtung dieser Verbindungen im elektrischen Feld.

Die erfindungsgemäßen flüssigkristallinen Medien enthalten vorzugsweise neben einer oder mehreren flüssigkristallinen Verbindungen, die Ladungstransporteigenschaften und/oder elektrolumineszierende Eigenschaften aufweisen, als weitere Bestandteile 2 bis 40, insbesondere 4 bis 30 Komponenten. Ganz besonders bevorzugt enthalten diese Medien 7 bis 25 Komponenten. Diese weiteren Bestandteile werden vorzugsweise ausgewählt aus nematischen oder nematogenen (monotropen oder isotropen) Substanzen, insbesondere Substanzen aus den Klassen der Azoxybenzole, Benzylidenaniline, Biphenyle, Terphenyle, Phenyl- oder Cyclohexylbenzoate, Cyclohexancarbonsäurephenyl- oder cyclohexylester, Phenyl- oder Cyclohexylester der Cyclohexylbenzoesäure, Phenyl- oder Cyclohexylester der Cyclohexylester der Benzoesäure, der Cyclohexancarbonsäure, bzw. der Cyclohexylcyclohexancarbonsäure, Phenylcyclohexane, Cyclohexylbenzoesäure, Phenylcyclohexane, Cyclohexylcyclohexane, Cyclohexylcyclohexane, Cyclohexylcyclohexane, Cyclohexylcyclohexane, Cyclohexylcyclohexene, 1,4-Bis-cyclohexylbenzole, 4,4'-Bis-cyclo-hexylbiphenyle, Phenyl- oder Cyclohexyl-1,3-dithiane, 1,2-Diphenylchane, 1,2-Dicyclohexylcyclohexylethane, 1-Phenyl-2-cyclohexylchane, 1-Cyclohexyl-2-(4-phenyl-cyclohexyl)-ethane, 1-Cyclohexyl-2-biphenylylethane, 1-Phenyl-2-cyclohexylphenylethane, gegebenenfalls halogenierten Stilbene, Benzylphenylether, Tolane und substituierten Zimtsäuren. Die 1,4-Phenylengruppen in diesen Verbindungen können auch fluoriert sein.

Bevorzugte kalamitische Flüssigkristalle für die Anwendung in homeotrop orientierten Zellen besitzen eine symmetrische Struktur der allgemeinen Formel:

65 Meso-Sy-Meso,

10

wobei Meso jeweils gleich ist und z. B. folgende Bedeutung besitzt:

DE 198 09 944 A 1

Meso:

$$R-O \longrightarrow m$$

 $R = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ M \end{bmatrix}$

$$R = N \longrightarrow m$$

$$R - O$$
 O

$$R \stackrel{N}{\longleftarrow} O \stackrel{}{\longleftarrow} O$$

$$R = O_{N} m$$

$$R = O_{\overline{m}}$$

$$R - O - O - O$$

o \rangle

10

15

20

25

30

R-(/_X)

 $R \xrightarrow{(F)_n} (F)_n$ $(F)_n (F)_n$

R = Alkyl Alkenyl;

– gegebenenfalls 1–4fach Fluor substituiert. m = 1–3; n = 0,1; Σn = 1–4.

35

Sy kann z. B. eines der nachstehend aufgeführten Zentralteile sein:

Sy:

45

50

55

60

65

DE 198 09 944 A 1

$$-c \equiv c - \sqrt{o} - c \equiv c - - - c \equiv c - \sqrt{x} - c \equiv c - - c \equiv c - \sqrt{x} - c \equiv c - c \equiv c - \sqrt{x} - c \equiv c - c \equiv c - c \equiv c - \sqrt{x} - c \equiv c - c$$

n = 0,1 m = 1-3 V = CH, CF, N X = O, S

25

40

45

50

55

60

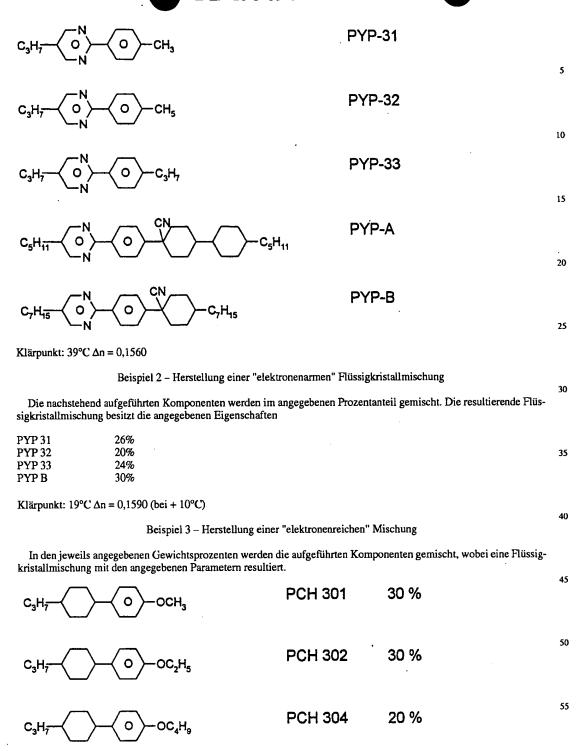
65

Beispiele

Beispiel 1 - Herstellung einer "elektronenarmen" Flüssigkristallmischung

Jeweils 20 Gewichtsprozente der nachstehend aufgeführten Einzelkomponenten werden gemischt und solange erwärmt bis eine isotrope Lösung entsteht. Nach dem Erkalten bildet sich eine flüssigkristalline Mischung mit den angegebenen Daten.

DE 198 09 944 A 1



0

BCH 201

BCH 301

10 %

10 %

60

65

29%

Beispiel 4 - Herstellung einer "elektronenreichen" Mischung

5 Wie in Beispiel 3 werden die aufgeführten Komponenten in den jeweils angegebenen Prozentanteilen gemischt.

PCH 304 24% C_4H_9 O OC_2H_5 PCH 402 14 % C_8H_{11} O OC_3H_3 PCH 501 22 %

PCH 502 11 %

Klärpunkt: 33,3°C.

PCH 302

Für die Temperaturabhängigkeit der Brechungsindices der Mischung wurde die in Fig. 1 dargestellte, bei einer Wellenlänge von 589 nm gemessene Korrelation gefunden. In Fig. 1 bedeuten n(o) den ordentlichen und n(e) den außerordentlichen Brechungsindex in der flüssigkristallinen Phase und n den Brechungsindex in der isotropen Phase.

Beispiel 5 - Mischung aus einer "elektronenarmen" und "elektronenreichen" Mischung und einem Fluoreszenzfarbstoff

Jeweils gleiche Anteile der Mischungen aus Beispiel 2 und Beispiel 3 werden gemischt. Diese Mischung hat einen Klärpunkt von 34,5°C und ein Δn = 0,1160. Zu dieser Mischung werden 2% des Benzoxazolylzimtesters der obenstehenden Formel V als Fluoreszenzfarbstoff gegeben und nach dem Erwärmen über den Klärpunkt abgekühlt. Die resultierende Fluoreszenzmischung klärt um 1°C höher.

In Analogie zu den obenstehenden Beispielen können durch Mischen der oben genannten elektronenarmen und elektronenreichen Mischungen mit den aufgeführten Fluoreszenzfarbstoffen weitere flüssigkristalline Fluoreszenzfarbstoffmischungen hergestellt werden, die die erfindungsgemäße Aufgabe erfüllen.

Patentansprüche

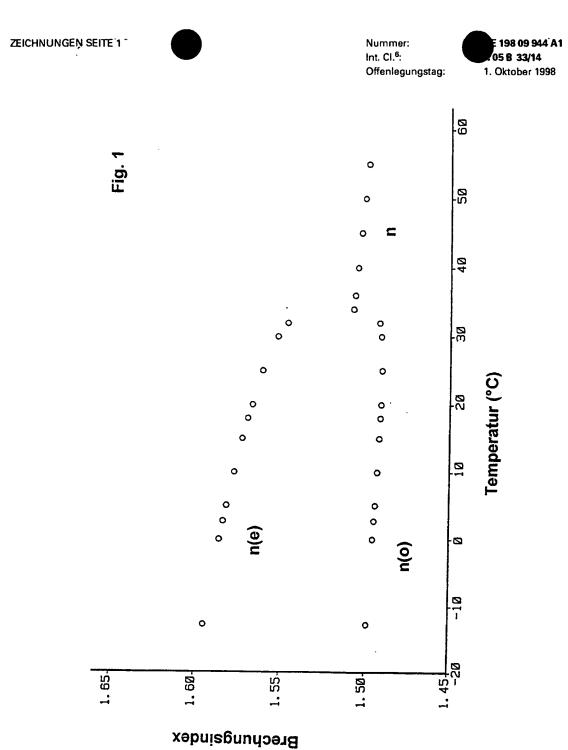
- Elektrolumineszierende Flüssigkristallvorrichtung, enthaltend eine oder mehrere Schichten, wobei mindestens eine dieser Schichten ein flüssigkristallines Medium enthält, welches Verbindungen aufweist die Elektrolumineszenz- und/oder Ladungstransporteigenschaften besitzen, dadurch gekennzeichnet, daß die Vorrichtung mit Wechselspannung betrieben wird.
 - Élektrolumineszierende Flüssigkristallvorrichtung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das flüssigkristalline Medium flüssigkristalline Ladungstransportverbindungen aufweist.
 - 3. Elektrolumineszierende Flüssigkristallvorrichtung nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, daß das flüssigkristalline Medium kalamitisch flüssigkristalline Ladungstransportverbindungen aufweist.
 - Elektrolumineszierende Flüssigkristallvorrichtung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das flüssigkristalline Medium flüssigkristalline elektrolumineszierende Verbindungen aufweist.
- Elektrolumineszierende Flüssigkristallvorrichtung nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, daß das flüssigkristalline Medium kalamitisch flüssigkristalline elektrolumineszierende Verbindungen aufweist.
 - 6. Flüssigkristallines Medium nach einem der Ansprüche 1 bis 5.
 - 7. Flüssigkristall-Anzeigeelement basierend auf einer elektrolumineszierenden Flüssigkristallvorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 5.
- 8. Verwendung einer elektrolumineszierenden Flüssigkristallvorrichtung nach einem der Ansprüche 1 bis 5 als Flüssigkristall-Anzeigeelement, als Lichtquelle für unpolarisiertes oder polarisiertes und/oder farbiges Licht, oder als aktives Element in elektrooptischen Anordnungen.

Hierzu 1 Seite(n) Zeichnungen

60

45

- Leerseite -



This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning Operations and is not part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

BLACK BORDERS

☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
☐ FADED TEXT OR DRAWING
BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
SKEWED/SLANTED IMAGES
☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
□ OTHER:

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.

This Page Blank (uspto)